

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

10.11.03

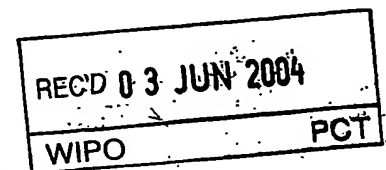
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2003年 3月31日

出願番号  
Application Number: 特願2003-097022  
[ST. 10/C]: [JP2003-097022]

出願人  
Applicant(s): 独立行政法人 科学技術振興機構

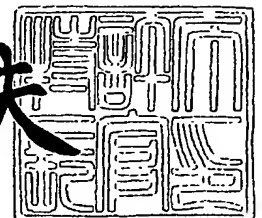


PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 5月21日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 Y2002-P469

【特記事項】 特許法第 3 0 条第 1 項の規定の適用を受けようとする特  
許出願

【提出日】 平成15年 3月31日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C04B 35/26  
H01F 1/00  
H05K 9/00

【発明者】

    【住所又は居所】 岡山県岡山市清水 1 - 1 4 - 1 0

    【氏名】 高田 潤

【発明者】

    【住所又は居所】 岡山県岡山市津島南 2 - 7 - 1 0 - 1

    【氏名】 藤井 達生

【発明者】

    【住所又は居所】 岡山県岡山市学南町 3 - 3 - 3 0 山田コーポ S - 1 0 2

    【氏名】 中西 真

【特許出願人】

    【識別番号】 396020800

    【氏名又は名称】 科学技術振興事業団

【代理人】

    【識別番号】 100108671

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 西 義之

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 048541

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 新規性喪失の例外証明書 1

【提出物件の特記事項】 追って提出する。

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 SiC-六方晶フェライト系セラミックス複合型電磁波吸収体

【特許請求の範囲】

【請求項1】 六方晶フェライトとSiCの複合焼結体からなることを特徴とする高周波数帯域用SiC-六方晶フェライト系セラミックス複合型電磁波吸収体。

【請求項2】 SiCがSiC粉末又は繊維を六方晶フェライトに対して1～5重量%添加したものであることを特徴とする請求項1記載の電磁波吸収体。

【請求項3】 SiCが不融化处理したSiC前駆体を六方晶フェライトに対して1～5重量%添加することにより形成されたものであることを特徴とする請求項1記載の電磁波吸収体。

【請求項4】 六方晶フェライトがY型またはZ型であることを特徴とする請求項1ないし3のいずれかに記載の電磁波吸収体。

【請求項5】 六方晶フェライトが $\text{Ba}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ 又は $\text{Ba}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$ であることを特徴とする請求項4記載の電磁波吸収体。

【請求項6】 SiC粉末又は繊維を、焼結助剤とともに六方晶フェライトへ1～5重量%混合し、成型後、700～900℃で焼結することを特徴とする請求項2記載の電磁波吸収体の製造方法。

【請求項7】 不融化处理したSiC前駆体を、六方晶フェライトへ1～5重量%混合し、成型後、焼結することを特徴とする請求項3記載の電磁波吸収体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、六方晶フェライトとSiCの複合焼結体からなる、高周波数帯域(GHz帯域)における広帯域で高吸収の電磁波吸収体とその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術とその課題】

近年、無線LAN、高度交通システム、次世代携帯電話などに使用される周波

数が、MHz 帯域から高速・大量の情報伝達可能な GHz 帯域へと変わってきている。

#### 【0003】

この帯域で、機器の誤作動防止用の電磁波吸収体については、現在、カーボン含有樹脂などが主に用いられているが、吸収帯域の幅は狭く、耐熱性などに問題がある。

#### 【0004】

また、スピネル系フェライトも電磁波吸収体に用いられているが、これは、スネーク現象（1GHz付近での自然共鳴のため、それ以上の高周波数領域で吸収を示さない）から、GHz 帯域での使用は難しい。

#### 【0005】

本発明者は、先に、スピネルフェライトと SiC の複合焼結体が、GHz 帯域で電磁波吸収体として有効（GHz 領域の吸収は、SiC に基づく）なことを見出し、特許出願した（非特許文献 1、特許文献 1）。

#### 【0006】

しかし、この複合焼結体は、磁性損失材料であるスピネルフェライト（吸収周波数数百 MHz）と誘電損失材料である SiC（吸収周波数 10 GHz ～）を複合化したものであるが、磁性損失のみが発現し、GHz 帯域まで吸収周波数は高くなるが、吸収幅が狭いという問題があった。

#### 【0007】

また、六方晶フェライトが GHz 帯域で電磁波吸収体となることも知られており（非特許文献 2 ～ 4）、M 型の  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  の共鳴周波数は 50 GHz であり、Fe を Ti, Mn で置換した  $\text{Ba}[\text{Fe}_{12-x}(\text{Ti}_{0.5}\text{Mn}_{0.5})_x]\text{O}_{19}$  の置換量  $x = 2.5$  のもので共鳴周波数は 16 GHz、 $x = 4.5$  のもので共鳴周波数は 6 GHz であり、フェロックスプレナー型の  $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ （Y 型）で共鳴周波数は 5 ～ 10 GHz、 $\text{Ba}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$ （Z 型）で共鳴周波数は 1 GHz であり、やはり、吸収帯域の幅が小さいという問題点などある。

#### 【0008】

#### 【非特許文献 1】

高田 潤 他「プレセラミックス法によるフェライト系複合材料の作製と電波吸収特性」，日本応用磁気学会誌，Vol.26, No.6, p818-822(2002)

【非特許文献2】

花浜 理宏 他「M型六方晶フェライトを用いた40GHz帯用電波吸収体の広帯域化に関する検討」，電子情報通信学会大会講演論文集，Vol.2002，通信 1PAGE, 384(2002)

【非特許文献3】

乾 哲司 他「六方晶 $Mg_2Y$ フェライトを用いた広帯電波吸収体」，電子情報通信学会大会講演論文集，Vol.1999，総合 2PAGE, 340(1999)

【非特許文献4】

太田 博康 他「M型六方晶フェライト複合シートの複素透磁率と電波吸収特性」，電子情報通信学会大会講演論文集，Vol.2000，総合 2PAGE.728-729(2000)

【特許文献1】

特開2002-37662号公報

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、六方晶フェライトと導電性を有するSiCを複合焼結することによって、GHz帯域で幅広い周波数範囲で、高吸収量を有する電磁波吸収体を提供できることを見出した。

【0010】

すなわち、本発明は、(1) 六方晶フェライトとSiCの複合焼結体からなることを特徴とする高周波数帯域用SiC-六方晶フェライト系セラミックス複合型電磁波吸収体、である。

また、本発明は、(2) SiCがSiC粉末又は繊維を六方晶フェライトに対して1～5重量%添加したものであることを特徴とする上記(1)の電磁波吸収体、である。

また、本発明は、(3) SiCが不融化处理したSiC前駆体を六方晶フェライトに対して1～5重量%添加することにより形成されたものであることを特徴とする上記(1)の電磁波吸収体、である。

また、本発明は、(4) 六方晶フェライトがY型またはZ型であることを特徴とする上記(1)ないし(3)のいずれかの電磁波吸収体、である。

また、本発明は、(5) 六方晶フェライトが $Ba_2Ni_2Fe_{12}O_{22}$ 又は $Ba_3Co_2Fe_{24}O_{41}$ であることを特徴とする上記(1)ないし(3)のいずれかの電磁波吸収体、である。

#### 【0011】

さらに、本発明は、(6) SiC粉末又は繊維を、焼結助剤とともに六方晶フェライトへ1～5重量%混合し、成型後、700～900℃で焼結することを特徴とする上記(2)の電磁波吸収体の製造方法、である。

また、本発明は、(6) 不融化处理したSiC前駆体を、六方晶フェライトへ1～5重量%混合し、成型後、焼結することを特徴とする上記(3)の電磁波吸収体の製造方法、である。

#### 【0012】

フェライトは、 $Fe_2O_3$ を主成分とする磁性酸化物の総称であり、a)スピネルフェライト、b)六方晶フェライト、c)ガーネット型、d)ペロブスカイト型がある。六方晶フェライトは、Baなど含む鉄酸化物系磁性材料で、結晶構造が六方晶系のものであり、①マグネトプランバイト(M)型と②フェロックスプラナー型(Y型、X型、Z型、W型、U型)があり、フェロックスプラナー型では、Y型、Z型、が、一般的である。

#### 【0013】

六方晶フェライトの組成は、例えば、 $BaO-AO-Fe_2O_3$ の平衡状態図で示される。ここで、BaOのBaの代わりに、Sr、Pbなどあり得る。Aは、2価金属で、Mg、Co、Ni、Cu、Znなどである。

#### 【0014】

導電性を有するSiCは六方晶フェライト等の絶縁体中に分散した場合に、初めて電磁波を吸収する作用がもたらされる。そのSiCの吸収波長はSiCの来歴によって違い、無機高分子のポリカルボシラン(PCS)からの場合、およそ8GHzであり、SiC粉体混合の場合、およそ10GHz程度である。

#### 【0015】

上記のとおり、フェライトは、磁性損失に基づく電磁波吸収を示し、SiCは、誘電損失に基づく電磁波吸収を示すが、本発明者らは、この両者を複合化させ、磁性損失と誘電損失を併せ利用した、GHz帯域で、広吸収幅、高吸収量を有する電磁波吸収複合焼結体の実現に成功した。図1に、このように、磁性損失と誘電損失を併せ利用した広帯域化の概念を示す。

#### 【0016】

六方晶フェライトとしては、例えば、 $\text{Ba}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ （本明細書では、 $\text{Ni}_2\text{Y}$ と表記している。）や $\text{Ba}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$ （本明細書では、 $\text{Co}_2\text{Z}$ と表記している。）を用いる。六方晶フェライトとSiCの組成を選ぶことによって、電磁波吸収領域を、GHz領域で種々、替えることが出来る。例えば、Y型六方晶フェライトへ、SiCを数重量%入れた複合体は、7GHz、及び11GHzに電磁波吸収ダブルピークを有し（前者は、六方晶フェライト磁性損失、後者はSiC誘電損失による）、吸収量-15dBでの吸収幅は、6GHzであり、広幅、高吸収のものとなる。

#### 【0017】

この複合焼結体は、①SiC粉末又は繊維を、六方晶フェライトへ少量部混合し、焼結助剤とともに低温焼結するか、又は、②不融化处理したSiC前駆体を、やはり六方晶フェライトへ少量部混合、焼結する方法によって得られる。この①の低温焼結法の方が、六方晶フェライト全てに、適用でき、好ましい製法である。②プレセラミックス法は、適用出来る六方晶フェライトに制限がある。

#### 【0018】

##### 【発明の実施の形態】

##### ①低温焼結法

図2に、代表的な低温焼結法のフローチャートを示す。

$\text{Ni}_2\text{Y}$ などの六方晶フェライトとSiCの焼結複合体を作ろうとすると、高温熱処理が必要になり、温度が高くなるにつれてBaとSiが反応し、組成ずれが起こり、フェライトの特性が劣化する。そこで、焼結補助剤を用い、低温焼結する。焼結補助剤は、 $\text{B}_2\text{O}_3$ が好ましいが、他のものでもよい。 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 、 $\text{PbO}$ 、 $\text{V}_2\text{O}_5$ などの金属酸化物で、六方晶フェライト、SiCの複合焼結の可



能なものならよい。補助剤は、0.2～10重量%、好ましくは1～5重量%とする。焼結温度は、六方晶フェライト、焼結補助剤、の系によって違ってくるが、1200℃に上げるとフェライトの破壊、補助剤との反応などが起こり、好ましくない。焼結温度は、好ましくは空气中で700～900℃である。

#### 【0019】

##### ②プレセラミックス法

図3に、代表的なプレセラミックス法のフローチャートを示す。

シリコン系セラミックス作成前駆体 ( $-\text{SiHCH}_3-\text{CH}_2-$ )<sub>n</sub> であるポリカルボシラン (PCS) を、不融化处理する。不融化处理はPCS粉末の表面に、 $\text{SiO}_2$ 被膜を形成する処理であり、その処理方法自体は公知の手段である（上記の特許文献1参照）。すなわち、不融化处理には、PCS表面を約200～600℃の温度範囲で酸化雰囲気、例えば、大気中において10時間程度以上熱処理を行い酸化させて $\text{SiO}_2$ 酸化被膜を形成する熱酸化不融化法とPCS表面に電子線あるいは $\gamma$ 線を当て $\text{Si}-\text{Si}$ 結合をつくり皮膜を形成する電子線不融化法がある。

#### 【0020】

PCSの混合割合は、Ba六方晶フェライトに対して、1～30重量%が好ましく、より好ましくは、2～10重量%である。一次熱処理は、900～1200℃、不活性ガス下で行い、2次熱処理は、900～1200℃、好ましくは1000℃近傍で、空气中で行う。

#### 【0021】

##### 【実施例】

##### 実施例1

原料として、 $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{CoO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を、 $\text{Ba}:\text{Co}:\text{Fe}=3:2:24$ の割合で混合し、1200℃で6時間焼結して、Baフェライト ( $\text{Co}_2\text{Z}:\text{Z}$ 型) 粉末を作製した。この $\text{BaCo}_2\text{Z}$ 粉末に対して、 $\text{B}_2\text{O}_3$ （シグマアルドリッチジャパン（株）SAJ特級：純度90%）を1重量%、 $\text{SiC}$ 繊維（日本カーボン社の $\text{SiC}$ 繊維）5重量%を混合した。この混合粉末をペレット状にプレス成形して3個の試料を作製後、大気中700℃で6時間焼結を行った。3

個の試料は厚さをそれぞれ 2.6 mm、3.1 mm、4.0 mm とした。他に、比較例として  $\text{Co}_2\text{Z}$  粉末のみを焼結した試料厚み 3.7 mm のものを作製した。

#### 【0022】

焼結補助剤として  $\text{B}_2\text{O}_3$  を使用することにより  $\text{Co}_2\text{Z}$  と  $\text{SiC}$  繊維の複合焼結体が低温焼結で得られた。得られた焼結体を、粉末 X 線回折測定、走査型電子顕微鏡 (SEM) による組織観察、ネットワークアナライザによる電波吸収量測定を行った。図 4 に、4 種の試料のそれぞれの電磁波吸収特性を示す。試料厚さ 3.1 mm のものは誘電損失と磁性損失を併せ持っており、広い周波数範囲に亘る吸収を示すことが明らかになった。吸収量は、完全吸収の  $-20\text{ dB}$  とはならなかったが、 $-10\text{ dB}$  において、6.8 GHz という吸収幅を示した。

#### 【0023】

##### 実施例 2

原料として、 $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{NiO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を  $\text{Ba}:\text{Ni}:\text{Fe}=2:2:12$  の割合で混合し、大気中  $1200^\circ\text{C}$  で 6 時間焼成して、 $\text{Ba}$  フェライト ( $\text{Ni}_2\text{Y}:\text{Y}$  型) 粉末を作製した。この  $\text{Ni}_2\text{Y}$  粉末に対して、不融化处理した  $\text{PCS}$  を 3 重量% 混合した。不融化处理は空气中  $500^\circ\text{C}$  で 10 時間行った。この混合粉末をペレット状にプレス成形して 3 個の試料を作製後、 $\text{Ar}$  雰囲気下で  $1000^\circ\text{C}$  で 6 時間一次焼結を行った。その後、3 個の試料をそれぞれ、大気中で、 $1000^\circ\text{C}$  (a)、 $1100^\circ\text{C}$  (b)、 $1200^\circ\text{C}$  (c) で 6 時間二次焼結を行った。

#### 【0024】

得られた 3 個の試料の焼結体を実施例 1 と同様に、粉末 X 線回折測定、走査型電子顕微鏡 (SEM) による組織観察、ネットワークアナライザによる電波吸収量測定を行った。図 5 に、(a), (b), (c) それぞれの電磁波吸収特性を示す。二次焼結温度が高くなるにつれて吸収特性は悪くなっている。しかし、二次焼結を  $1000^\circ\text{C}$  で行った試料は、完全吸収の  $-20\text{ dB}$  とはならなかったが、 $-15\text{ dB}$  において、6.2 GHz という吸収幅を示した。これより、二次焼結温度は  $1000^\circ\text{C}$  以下が好ましいことが分る。

#### 【0025】

図 6 に、二次焼結を 1000℃で行った試料の複素比透磁率 ( $\mu_r$ )・複素比誘電率 ( $\epsilon_r$ ) の測定結果を示す。これにより、磁性損失と誘電損失を併せもつ複合焼結体を得られたことが分る。

#### 【0026】

##### 【発明の効果】

今後、急速に、進歩、進展するであろう高度情報通信社会においては、GHz 帯域での電磁波吸収体が不可欠となるから、本発明の、GHz 域での高性能電磁波吸収体の実用化の可能性は高い。

##### 【図面の簡単な説明】

##### 【図 1】

図 1 は、異なる材料の複合化により磁性損失と誘電損失を併せ利用して広帯域化を図った概念図である。

##### 【図 2】

図 2 は、本発明の電磁波吸収体を製造するための低温焼結法のフローチャートである。

##### 【図 3】

図 3 は、本発明の電磁波吸収体を製造するためのプレセラミックス法のフローチャートである。

##### 【図 4】

図 4 は、実施例 1 で得られた焼結体の電磁波吸収特性を示すグラフである。

##### 【図 5】

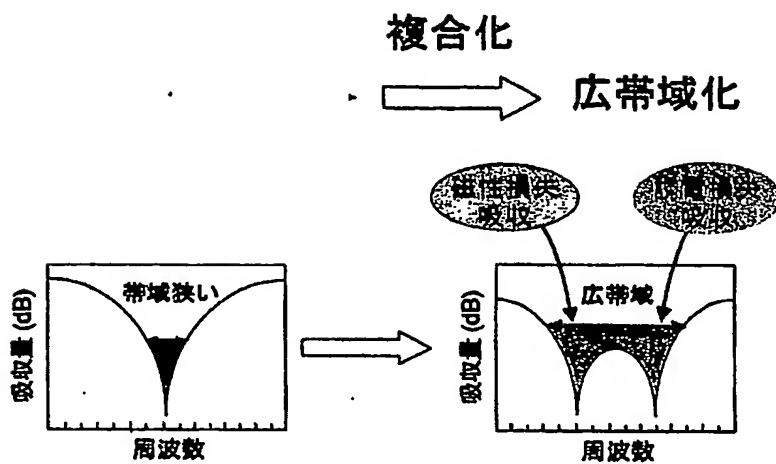
図 5 は、実施例 2 で得られた焼結体の電磁波吸収特性を示すグラフである。

##### 【図 6】

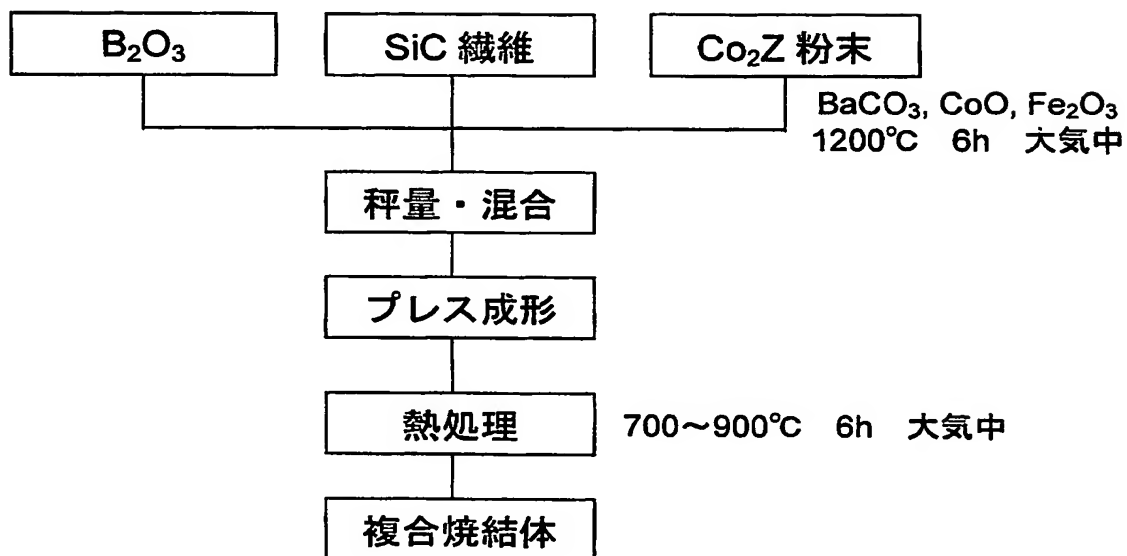
図 6 は、実施例 2 で得られた焼結体の複素透磁率・複素誘電率測定結果を示すグラフである。

【書類名】 図面

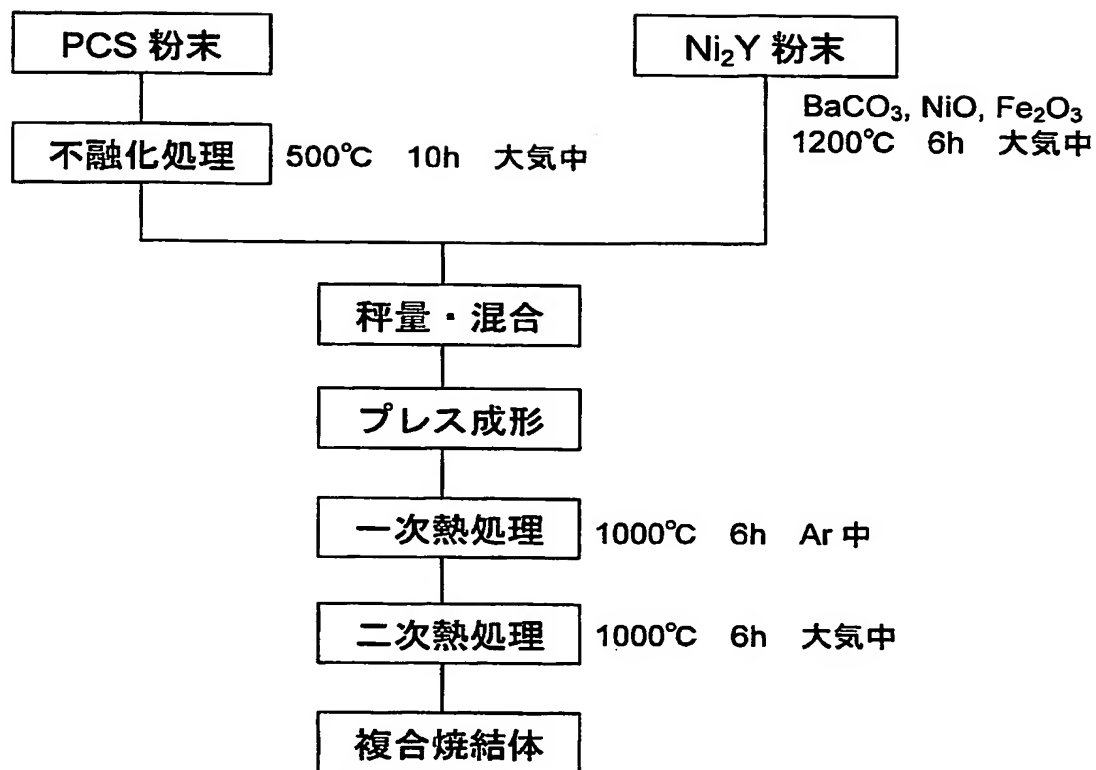
【図 1】



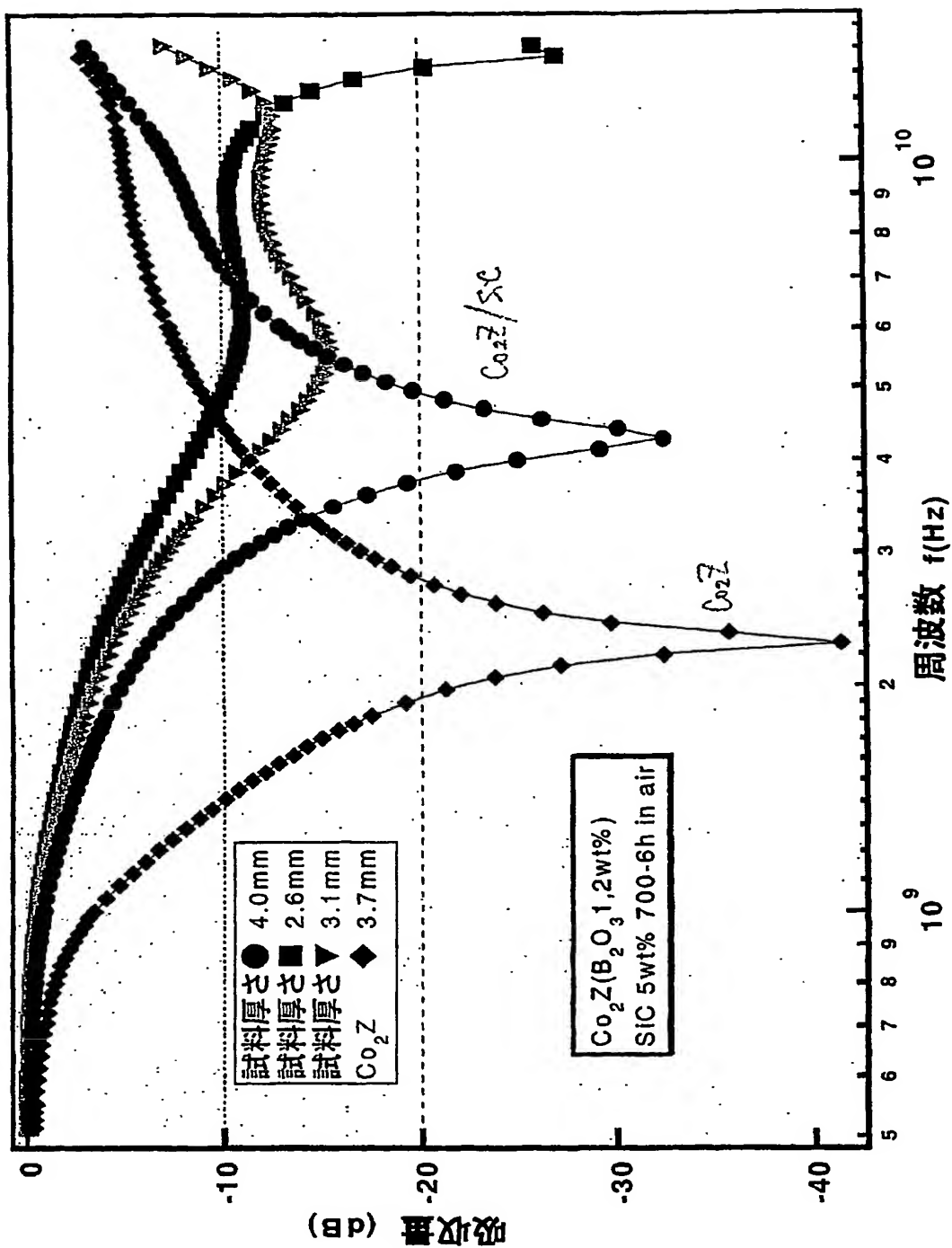
【図 2】



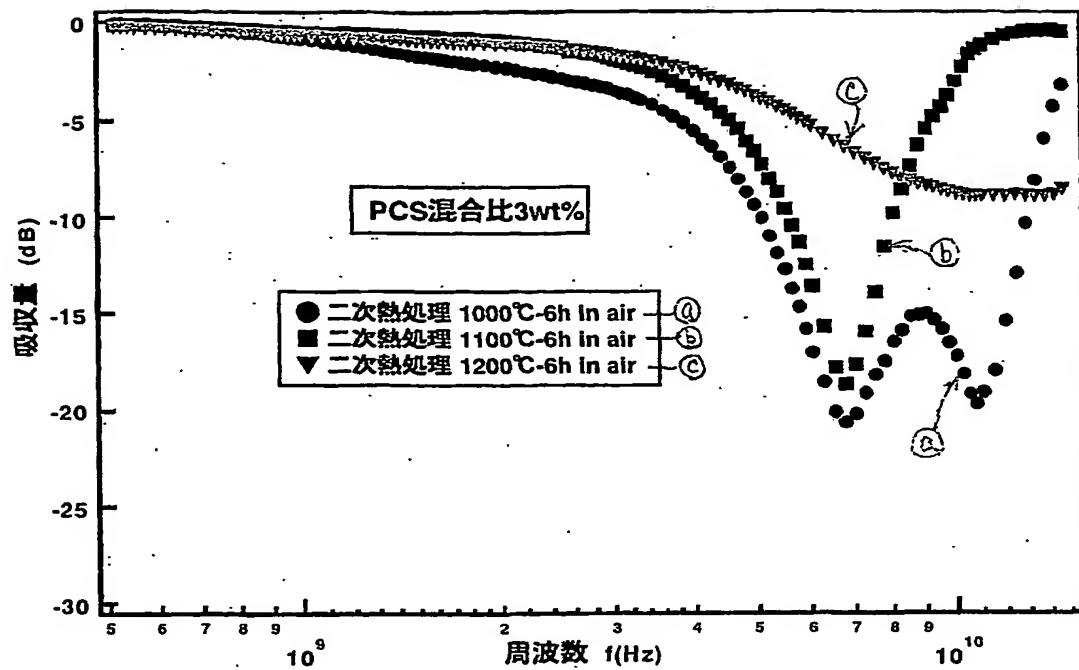
【図 3】



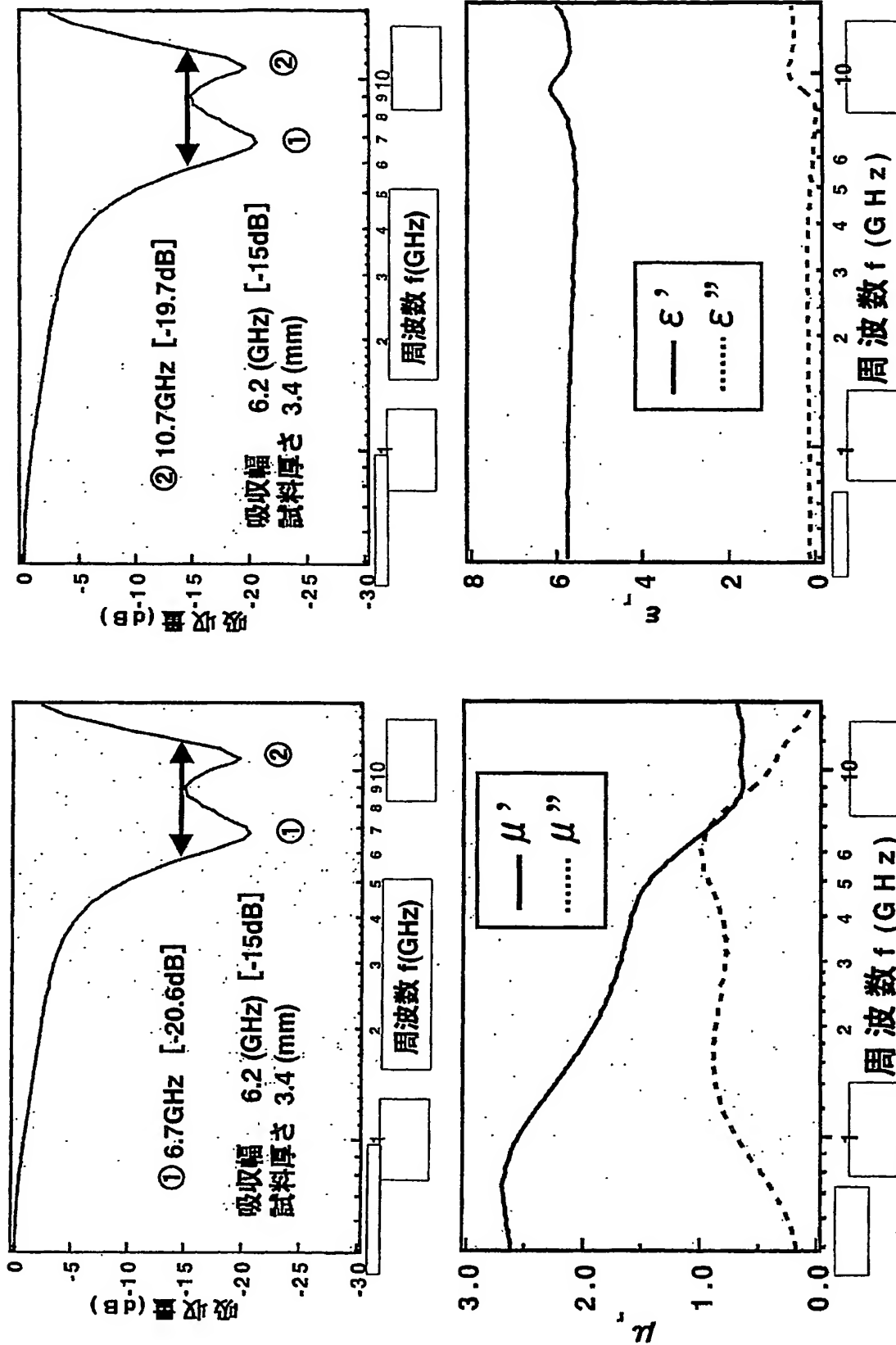
【図4】



【図 5】



【図6】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】近年、無線LAN、高度交通システム、次世代携帯電話などに使用される周波数が、MHz帯域から高速・大量の情報伝達可能なGHz帯域へと変わってきている。この帯域で、機器の誤作動防止用の電磁波吸収体については、現在、カーボン含有樹脂などが主に用いられているが、吸収帯域の幅は狭く、耐熱性などに問題がある。

【構成】六方晶フェライトとSiCの複合焼結体からなることを特徴とする高周波数帯域用SiC-六方晶フェライト系セラミックス複合型電磁波吸収体。SiC粉末又は繊維を、焼結助剤とともに六方晶フェライトへ1～5重量%混合し、成型後、700～900℃で焼結する方法、又は不融化处理したSiC前駆体を、六方晶フェライトへ1～5重量%混合し、成型後、焼結することにより製造する。

【選択図】 図5

【書類名】 出願人名義変更届 (一般承継)  
【提出日】 平成15年10月31日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【事件の表示】  
【出願番号】 特願2003- 97022  
【承継人】  
【識別番号】 503360115  
【住所又は居所】 埼玉県川口市本町四丁目1番8号  
【氏名又は名称】 独立行政法人科学技術振興機構  
【代表者】 沖村 憲樹  
【連絡先】 〒102-8666 東京都千代田区四番町5-3 独立行政法人科学技術振興機構 知的財産戦略室 佐々木吉正 TEL 03-5214-8486 FAX 03-5214-8417

【提出物件の目録】  
【物件名】 権利の承継を証明する書面 1  
【援用の表示】 平成15年10月31日付提出の特第許3469156号にかかる一般承継による移転登録申請書に添付のものを援用する。  
【物件名】 登記簿謄本 1  
【援用の表示】 平成15年10月31日付提出の特第許3469156号にかかる一般承継による移転登録申請書に添付のものを援用する。

特願 2003-097022

出願人履歴情報

識別番号

[396020800]

1. 変更年月日

1998年 2月24日

[変更理由]

名称変更

住 所

埼玉県川口市本町4丁目1番8号

氏 名

科学技術振興事業団

特願 2 0 0 3 - 0 9 7 0 2 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 5 0 3 3 6 0 1 1 5 ]

1. 変更年月日

2 0 0 3 年 1 0 月 1 日

[変更理由]

新規登録

住 所

埼玉県川口市本町 4 丁目 1 番 8 号

氏 名

独立行政法人 科学技術振興機構